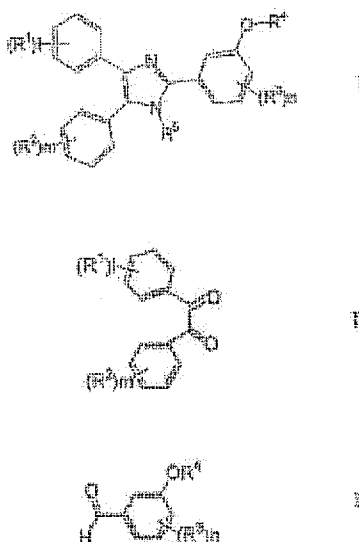


TRIPHENYLIMIDAZOLE

Publication number: JP2000273088 (A)
Publication date: 2000-10-03
Inventor(s): MITANI AKIRA; ICHINARI DAISUKE; SAIGA MUTSUUYUKI; HAMAMURA HIROSHI; SUGIURA TETSUYA +
Applicant(s): NIPPON SODA CO +
Classification:
- international: A01N43/50; C07D233/64; A01N43/48; C07D233/00; (IPC1-7): A01N43/50; C07D233/64
- European:
Application number: JP19990247117 19990901
Priority number(s): JP19990247117 19990901; JP19990009874 19990118

Abstract of JP 2000273088 (A)

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain a new triphenylimidazole compound capable of industrially advantageously being synthesized, having excellent bactericidal activity against pathogens to agricultural and horticultural crops and useful as the effective ingredient of a disinfectant such as agricultural and horticultural one having reliable effect and safely usable. **SOLUTION:** This new triphenylimidazole compound is expressed by formula I [wherein R1-R3 are each H, hydroxyl, a halogen, cyano, nitro, a 1-6C alkyl, a 2-6C alkenyl or the like; (l) and (m) are each 1-5; (n) is 0-4; R4 and R5 are each H, a 1-6C alkylcarbonyl, a 1-6C alkoxy(1-6C)alkylcarbonyl or the like; and with proviso that R1-R5 are not H at the same time] or its salt, and is e.g. 2-(3-hydroxy-4-methoxyphenyl)-4,5-diphenylimidazole. The compound of formula I (wherein R5 is H) is obtained by reacting a dibenzoyl compound of formula II and a benzaldehyde derivative of formula III with ammonium salts such as ammonium acetate and ammonium carbonate in a proper solvent at a temperature from room temperature to 150 deg.C.



Data supplied from the **espacenet** database — Worldwide

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2000-273088

(P2000-273088A)

(43) 公開日 平成12年10月3日 (2000. 10. 3)

| | | | |
|---------------------------|-------|----------------|-----------------|
| (51) Int.Cl. ⁷ | 識別記号 | F I | データベース (参考) |
| C 0 7 D 233/64 | 1 0 1 | C 0 7 D 233/64 | 1 0 1 4 H 0 1 1 |
| A 0 1 N 43/50 | | A 0 1 N 43/50 | L |

審査請求 未請求 請求項の数2 O L (全 28 頁)

(21) 出願番号 特願平11-247117

(22) 出願日 平成11年9月1日 (1999. 9. 1)

(31) 優先権主張番号 特願平11-9874

(32) 優先日 平成11年1月18日 (1999. 1. 18)

(33) 優先権主張国 日本 (J P)

(71) 出願人 000004307

日本曹達株式会社

東京都千代田区大手町2丁目2番1号

(72) 発明者 三谷 晃

神奈川県小田原市高田345 日本曹達株式会社小田原研究所内

(72) 発明者 市成 大輔

神奈川県小田原市高田345 日本曹達株式会社小田原研究所内

(74) 代理人 100096482

弁理士 東海 裕作 (外1名)

最終頁に続く

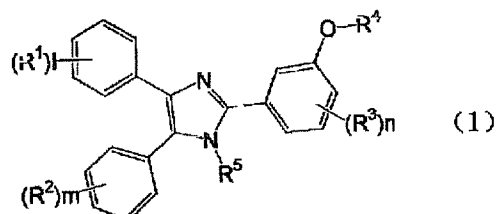
(54) 【発明の名称】 トリフェニルイミダゾール化合物および農園芸用殺菌剤

(57) 【要約】

【課題】新規トリフェニルイミダゾール化合物及び効果が確実で安全に使用できる該化合物を有効成分とする農園芸用殺菌剤を提供する。

【解決手段】一般式 (I)

【化1】



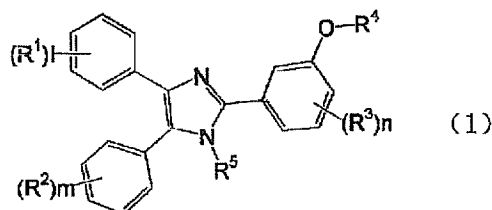
(式中、 R^1 , R^2 , R^3 は、それぞれ水素原子、ヒドロキシ基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、 C_{1-6} アルキル基、 C_{2-6} アルケニル基等を表し、 l , m は1~5の整数を表す。1及び m が2以上のとき、 R^1 及び R^2 は同一でも相異なっているもよい。 n は、0又は1~4の整数を表し、 n が2以上のとき、 R^3 は同一でも相異なっているもよい。 R^4 , R^5 はそれぞれ水素原子、 C_{1-6} アルキルカルボニル基、 C_{1-6} アルコキシカ

ルボニル基等を表す。) で表されるトリフェニルイミダゾール化合物及びその塩、並びに該化合物を有効成分とする農園芸用殺菌剤。

【特許請求の範囲】

【請求項1】一般式(Ⅰ)

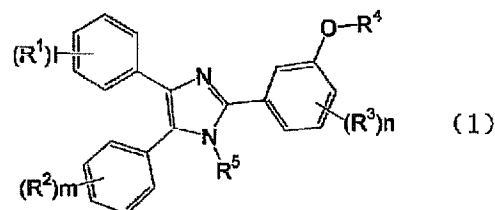
【化1】



(式中、 R^1 , R^2 , R^3 は、それぞれ独立して水素原子、ヒドロキシ基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、 C_{1-6} アルキル基、 C_{2-6} アルケニル基、 C_{2-6} アルキニル基、 C_{1-6} ハロアルキル基、 C_{2-6} ハロアルケニル基、 C_{1-6} アルコキシ基、ジ C_{1-6} アルキルアミノ基、 C_{3-6} シクロアルキル基、 C_{1-6} アルコキシカルボニル基、 C_{1-6} アルキルチオ基、 C_{1-6} アルキルスルフィニル基又は C_{1-6} アルキルスルホニル基を表し、 l , m は、それぞれ独立して1~5の整数を表し、 l 及び m が2以上のとき、 R^1 及び R^2 は、それぞれ同一でも相異なってもよい。 n は、0又は1~4の整数を表し、 n が2以上のとき、 R^3 は、同一でも相異なってもよい。 R^4 , R^5 は、それぞれ独立して水素原子、 C_{1-6} アルキルカルボニル基、 C_{1-6} アルコキシ C_{1-6} アルキルカルボニル基、 C_{1-6} アルコキシカルボニル基、 C_{1-6} アルキルカルバモイル基、置換基を有していてもよいベンゾイル基、 C_{1-6} アルキルスルホニル基、 C_{1-6} アルキルスルファモイル基、置換基を有していてもよいフェニルスルホニル基、 C_{1-6} アルコキシ C_{1-6} アルキル基又は C_{1-6} アルキルカルボキシ C_{1-6} アルキル基を表す。但し、 R^1 , R^2 , R^3 , R^4 及び R^5 が同時に水素原子である化合物を除く。) で表されるトリフェニルイミダゾール化合物及びその塩。

【請求項2】一般式(Ⅰ)

【化2】



(式中、 R^1 , R^2 , R^3 は、それぞれ独立して水素原子、ヒドロキシ基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、 C_{1-6} アルキル基、 C_{2-6} アルケニル基、 C_{2-6} アルキニル基、 C_{1-6} ハロアルキル基、 C_{2-6} ハロアルケニル基、 C_{1-6} アルコキシ基、ジ C_{1-6} アルキルアミノ基、 C_{3-6} シクロアルキル基、 C_{1-6} アルコキシカルボニル基、 C_{1-6} アルキルチオ基、 C_{1-6} アルキルスルフィニル基又は C_{1-6} アルキルスルホニル基を表し、 l , m は、それぞれ独立して1~5の整数を表し、 l 及び m が2以上のとき、 R^1 及び R^2 は、それぞれ同一でも相異なってもよい。 n は、0又は1~4の整数を表し、 n が2以上のとき、 R^3 は、同一でも相異なってもよい。 R^4 , R^5 は、それぞれ独立して水素原子、 C_{1-6} アルキルカルボニル基、 C_{1-6} アルコキシ C_{1-6} アルキルカルボニル基、 C_{1-6} アルコキシカルボニル基、 C_{1-6} アルキルカルバモイル基、置換基を有していてもよいベンゾイル基、 C_{1-6} アルキルスルホニル基、 C_{1-6} アルキルスルファモイル基、置換基を有していてもよいフェニルスルホニル基、 C_{1-6} アルコキシ C_{1-6} アルキル基又は C_{1-6} アルキルカルボキシ C_{1-6} アルキル基を表す。但し、 R^1 , R^2 , R^3 , R^4 及び R^5 が同時に水素原子である化合物を除く。) で表されるトリフェニルイミダゾール化合物及びその塩。

も相異なってもよい。 n は、0又は1~4の整数を表し、 n が2以上のとき、 R^3 は、同一でも相異なってもよい。 R^4 , R^5 は、それぞれ独立して水素原子、 C_{1-6} アルキルカルボニル基、 C_{1-6} アルコキシ C_{1-6} アルキルカルボニル基、 C_{1-6} アルコキシカルボニル基、 C_{1-6} アルキルカルバモイル基、置換基を有していてもよいベンゾイル基、 C_{1-6} アルキルスルホニル基、 C_{1-6} アルキルスルファモイル基、置換基を有していてもよいフェニルスルホニル基、 C_{1-6} アルコキシ C_{1-6} アルキル基又は、 C_{1-6} アルキルカルボキシ C_{1-6} アルキル基を表す。) で表される化合物、又はその農園芸学的に許容される塩の1種又は2種以上を有効成分として含有することを特徴とする農園芸用殺菌剤。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、新規なトリフェニルイミダゾール化合物及び該化合物を有効成分として含有する農園芸用殺菌剤に関する。

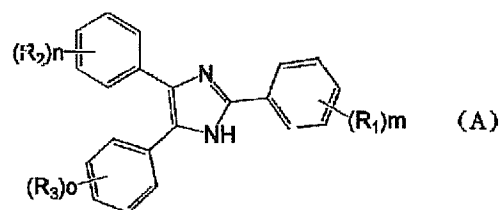
【0002】

【従来の技術】農園芸作物の栽培に当り、作物の病害に対して多数の防除薬剤が使用されている。しかしながら、その防除効力が不十分であったり、薬剤耐性の病原菌の出現によりその使用が制限されたり、植物体に薬害や汚染を生じたり、あるいは人畜魚類に対する毒性が強かったりすることから、必ずしも満足すべき防除薬とは言い難いものが少なくない。従って、かかる欠点の少ない安全に使用できる薬剤の出現が強く要請されている。

【0003】本発明に関連する化合物として、特開平9-176614号公報には、下記式(A)

【0004】

【化3】



【0005】で表される化合物が、紫外線吸収剤として有用であることが記載されている。しかしながら、農園芸用殺菌剤として有用であることは記載されていない。

【0006】

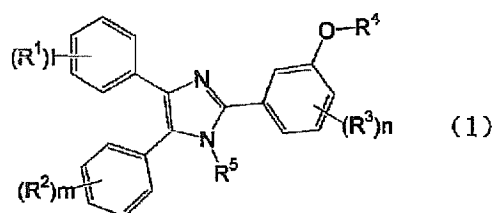
【発明が解決しようとする課題】本発明は、新規なトリフェニルイミダゾール化合物、及び工業的に有利に合成でき、効果が確実で安全に使用することができるトリフェニルイミダゾール化合物を有効成分として含有する農園芸用殺菌剤を提供することを目的とする。

【0007】

【課題を解決するための手段】本発明は、一般式(Ⅰ)

【0008】

【化4】



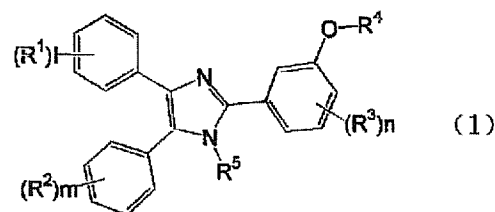
【0009】(式中、 R^1 、 R^2 、 R^3 は、それぞれ独立して水素原子、ヒドロキシ基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、 C_{1-6} アルキル基、 C_{2-6} アルケニル基、 C_{2-6} アルキニル基、 C_{1-6} ハロアルキル基、 C_{2-6} ハロアルケニル基、 C_{1-6} アルコキシ基、 C_{1-6} アルキルアミノ基、 C_{3-6} シクロアルキル基、 C_{1-6} アルコキシカルボニル基、 C_{1-6} アルキルチオ基、 C_{1-6} アルキルスルフィニル基又は C_{1-6} アルキルスルホニル基を表し、 l 、 m は、それぞれ独立して1～5の整数を表し、 l 及び m が2以上のとき、 R^1 及び R^2 はそれぞれ同一でも相異なってもよい。 n は、0又は1～4の整数を表し、 n が2以上のとき、 R^3 は、同一でも相異なってもよい。

【0010】 R^4 、 R^5 は、それぞれ独立して水素原子、 C_{1-6} アルキルカルボニル基、 C_{1-6} アルコキシ C_{1-6} アルキルカルボニル基、 C_{1-6} アルコキシカルボニル基、 C_{1-6} アルキルカルバモイル基、置換基を有していてもよいベンゾイル基、 C_{1-6} アルキルスルホニル基、 C_{1-6} アルキルスルファモイル基、置換基を有していてもよいフェニルスルホニル基、 C_{1-6} アルコキシ C_{1-6} アルキル基、又は C_{1-6} アルキルカルボキシ C_{1-6} アルキル基を表す。

【0011】但し、これらのうち、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 及び R^5 が同時に水素原子である化合物を除く。)で表されるトリフェニルイミダゾール化合物及びその塩、並びに一般式(I)

【0012】

【化5】



【0013】(式中、 R^1 、 R^2 、 R^3 は、それぞれ独立して水素原子、ヒドロキシ基、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、 C_{1-6} アルキル基、 C_{2-6} アルケニル基、 C_{2-6} アルキニル基、 C_{1-6} ハロアルキル基、 C_{2-6} ハロアルケニル基、 C_{1-6} アルコキシ基、 C_{1-6} アルキルアミノ基、 C_{3-6} シクロアルキル基、 C_{1-6} アルコキシカルボニル基、 C_{1-6} アルキルチオ基、 C_{1-6} アルキルスルフィニル基又は C_{1-6} アルキルスルホニル基を表し、 l 、 m は、それぞれ独立して1～5の整数を表し、 l 及び m が2以上のとき、 R^1 及び R^2 はそれぞれ

同一でも相異なってもよい。 n は、0又は1～4の整数を表し、 n が2以上のとき、 R^3 は、同一でも相異なってもよい。

【0014】 R^4 、 R^5 は、それぞれ独立して水素原子、 C_{1-6} アルキルカルボニル基、 C_{1-6} アルコキシ C_{1-6} アルキルカルボニル基、 C_{1-6} アルコキシカルボニル基、 C_{1-6} アルキルカルバモイル基、置換基を有していてもよいベンゾイル基、 C_{1-6} アルキルスルホニル基、 C_{1-6} アルキルスルファモイル基、置換基を有していてもよいフェニルスルホニル基、 C_{1-6} アルコキシ C_{1-6} アルキル基、又は C_{1-6} アルキルカルボキシ C_{1-6} アルキル基を表す。)で表される化合物、又はその農園芸学的に許容される塩の1種又は2種以上を有効成分として含有することを特徴とする農園芸用殺菌剤である。

【0015】以下、前記一般式(I)で表される本発明化合物を詳細に説明する。前記一般式(I)において、 R^1 、 R^2 及び R^3 は、それぞれ独立して水素原子、ヒドロキシ基、シアノ基、ニトロ基、フッ素、塩素、臭素等のハロゲン原子、メチル、エチル、プロピル、イソプロピル、ブチル、イソブチル、 s -ブチル、 t -ブチル、ペンチル及びその異性体、ヘキシル及びその異性体、ヘプチル及びその異性体、オクチル基及びその異性体等の C_{1-6} アルキル基、ビニル、2-プロペニル、アリル、クロチル、1-ブテニル、2-ブテニル、ブタジエニル基等の C_{2-6} アルケニル基、エチニル、1-プロピニル、2-プロピニル、1-ブチニル、2-ブチニル、3-ブチニル、プロパギル基等の C_{2-6} アルキニル基、フルオロメチル、1-フルオロエチル、2-フルオロエチル、ジフルオロメチル、トリフルオロメチル、ジフルオロクロロメチル、フルオロクロロメチル、トリクロロメチル、トリプロモメチル、トルフルオロエチル、ペンタフルオロエチル基等の C_{1-6} ハロアルキル基、クロロビニル、3-クロロ-2-プロペニル、1-クロロアリル、2-クロロアリル基等の C_{2-6} ハロアルケニル基、メトキシ、エトキシ、プロポキシ、イソプロポキシ、ブトキシ、 t -ブトキシ基等の C_{1-6} アルコキシ基、ジメチルアミノ、ジエチルアミノ、メチルエチルアミノ、ジプロピルアミノ基等の C_{1-6} アルキルアミノ基、シクロプロピル、シクロブチル、シクロペンチル、シクロヘキシル基等の C_{3-6} シクロアルキル基、メトキシカルボニル、エトキシカルボニル、プロポキシカルボニル、イソプロポキシカルボニル、 n -ブトキシカルボニル、 t -ブトキシカルボニル基等の C_{1-6} アルコキシカルボニル基、メチルチオ、エチルチオ、プロピルチオ、イソプロピルチオ、 n -ブチルチオ、 t -ブチルチオ基等の C_{1-6} アルキルチオ基、メチルスルフィニル、エチルスルフィニル、プロピルスルフィニル、イソプロピルスルフィニル、 n -ブチルスルフィニル、 t -ブチルスルフィニル基等の C_{1-6} アルキルスルフィニル基、メチルスルホニル、エチルスルホニル、プロピルスルホ

ニル、イソブチルスルホニル等、 n -ブチルスルホニル、 t -ブチルスルホニル基等の C_{1-6} アルキルスルホニル基等を表す。

【0016】1, m は、それぞれ独立して、1～5の整数を表し、1又は m が2以上を表すとき、 R^1 及び R^2 は、同一でも相異なっているもよい。 n は、0又は1～4の整数を表し、 n が2以上を表すとき、 R^3 は同一でも相異なっているもよい。

【0017】 R^4 及び R^5 は、それぞれ独立して、水素原子、アセチル、プロピオニル、ブチリル、イソブチリル、バレリル、イソバレリル、ピバロイル基等の C_{1-6} アルキルカルボニル基、メトキシアセチル、エトキシアセチル、メトキシプロピオニル、イソプロポキシアセチル、イソプロポキシプロピオニル、 t -ブトキシアセチル基等の C_{1-6} アルコキシ C_{1-6} アルキルカルボニル基、メトキシカルボニル、エトキシカルボニル、プロポキシカルボニル、イソプロポキシカルボニル、 n -ブトキシカルボニル、 t -ブトキシカルボニル基等の C_{1-6} アルコキシカルボニル基、

【0018】ベンゼン環の任意の位置に置換基を有しているもよいベンゾイル基、ベンゼン環の任意の位置に置換基を有しているもよいフェニルスルホニル基、メチルカルバモイル、エチルカルバモイル、ジメチルカルバモイル、ジエチルカルバモイル、メチルエチルカルバモイル、ジプロピルカルバモイル基等の C_{1-6} アルキルカルバモイル基、メチルスルホニル、エチルスルホニル、プロピルスルホニル、イソプロピルスルホニル、 n -ブチルスルホニル、 t -ブチルスルホニル基等の C_{1-6} アルキルスルホニル基、メチルスルファモイル、エチルスルファモイル、ジメチルスルファモイル、ジエチルスルファモイル、ジプロピルスルファモイル基等の C_{1-6} アルキルスルファモイル基、

【0019】メトキシメチル、エトキシメチル、プロポキシメチル、イソプロポキシメチル、 n -ブトキシメチル、 t -ブトキシメチル、メトキシエチル、エトキシエチル、プロポキシエチル、 n -ブトキシエチル、 t -ブトキシエチル基等の C_{1-6} アルコキシ C_{1-6} アルキル基、アセトキシメチル、アセトキシエチル、プロピオニルオキシメチル、プロピオニルオキシエチル、ブチリルオキシメチル、ブチリルオキシエチル、イソブチリルオ

キシメチル、イソブチリルオキシエチル、バレリルオキシメチル、バレリルオキシエチル、ピバロイルオキシメチル、ピバロイルオキシエチル基等の C_{1-6} アルキルカルボキシ C_{1-6} アルキル基等を表す。

【0020】前記置換基を有しているもよいベンゾイル基及びフェニルスルホニル基の置換基としては、ニトロ基、シアノ基、塩素、臭素、フッ素等のハロゲン原子、メチル、エチル基等の C_{1-6} アルキル基、トリフルオロメチル基等の C_{1-6} ハロアルキル基、メトキシカルボニル、エトキシカルボニル基等の C_{1-6} アルコキシカルボニル基、メトキシ、エトキシ、プロポキシ、イソプロポキシ、ブトキシ基等の C_{1-6} アルコキシ基等を挙げることができる。また、前記ベンゾイル基及びフェニルスルホニル基は、同一又は相異なる複数の置換基を有しているもよい。

【0021】また、前記一般式(I)で表される化合物の塩としては、前記一般式(I)で表される化合物の塩として安定して得ることができるものであれば特に制限はない。例えば、塩酸、硫酸、硝酸等の鉱酸の塩、酢酸、プロピオン酸等の有機酸の塩等を挙げることができる。これらの塩は、通常の合成化学的手法により容易に製造することができる。

【0022】なお、前記一般式(I)で表される化合物のうち、 R^1 , R^2 , R^3 , R^4 及び R^5 が同時に水素原子である化合物は、公知化合物であるため除かれている。

【0023】前記一般式(I)で表される本発明化合物は、農園芸作物病原菌に対し優れた殺菌活性を有し、本発明化合物を有効成分とする組成物は農園芸用殺菌剤として有用である。

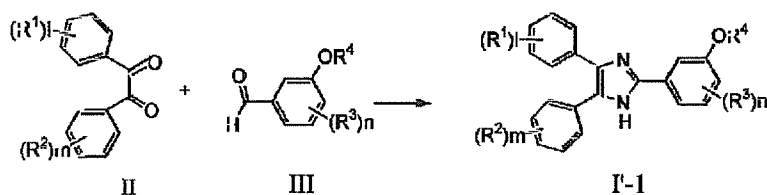
【0024】

【発明の実施の形態】前記一般式(I)で表される本発明化合物は、例えば、以下のようにして製造することができる。

【0025】(製造法1)本発明化合物(I)のうち、 R^5 が水素原子である化合物は、次の方法によって製造することができる。

【0026】

【化6】



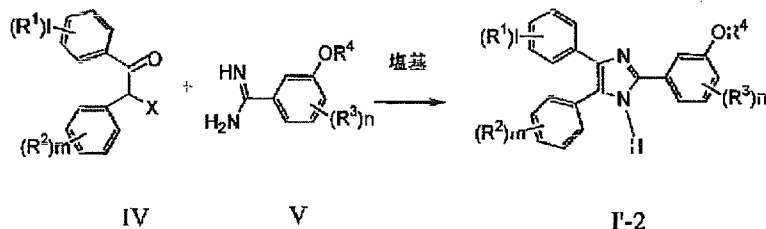
【0027】(式中、 R^1 , R^2 , R^3 , R^4 , 1, m 及び n は、前記と同じ意味を表す。)

すなわち、一般式(II)で表わされるジベンゾイル化合物と一般式(III)で表わされるベンズアルデヒド誘導

体、及び酢酸アンモニウム、炭酸アンモニウム、重炭酸アンモニウム、蟻酸アンモニウム等のアンモニウム塩類とを、適当な溶媒中、室温～150℃で反応させることにより、一般式(I'-1)で表わされる化合物を製造

することができる。

【0028】この反応に用いることのできる溶媒としては、酢酸等の有機酸、メタノール、エタノール等のアルコール類、水等を使用することができる。また、塩類として、酢酸アンモニウムを用いる場合、酢酸アンモニウムを加える代わりに、アンモニア水又はアンモニアを氷酢酸に添加して用いることもできる。酢酸アンモニウム



【0031】(式中、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 l 、 m 及び n は、前記と同じ意味を表し、 X はハロゲン原子を表す。)

すなわち、2位にハロゲン原子が置換した一般式(IV)で表わされる2-フェニルアセトフェノン類と、一般式(V)で表わされるベンズアミジン誘導体又はその塩とを、適当な塩基の存在下に、不活性溶媒中、室温～150℃で反応させることにより、一般式(I'-2)で表わされる化合物を製造することができる。

【0032】この反応においては、前記一般式(IV)で表される2-フェニルアセトフェノン類1当量に対し、前記一般式(V)で表されるベンズアミジン誘導体又はその塩を1～1.5当量程度、塩基を1～1.5当量程度をそれぞれ添加するのが好ましい。

【0033】この反応に用いることのできる溶媒としては、水、メタノール、エタノール、等のアルコール類、THF等のエーテル類、酢酸エチル等のエステル類、

等の塩類の添加量は、一般式(I)で表される化合物1当量に対し、5～20当量程度が好ましい。

【0029】(製造法2)また、本発明化合物(I)のうち、 R^5 が水素原子である化合物は次の方法によっても製造することができる。

【0030】

【化7】

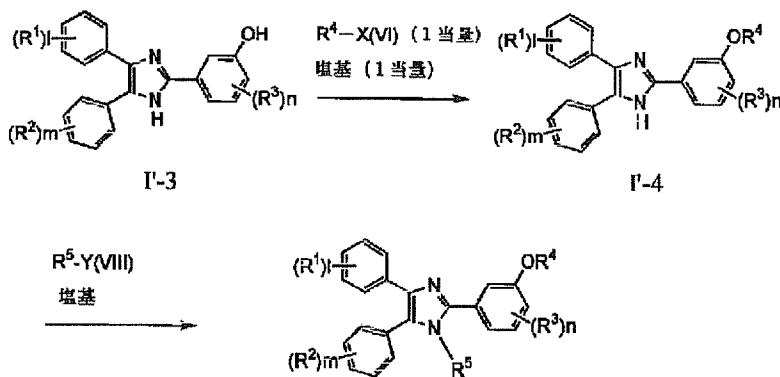
N,N-ジメチルホルムアミド(DMF)、ジメチルスルホキシド(DMSO)、アセトニトリル等を挙げることができる。

【0034】また、この反応に使用することができる塩基としては、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム等の炭酸塩、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム等の金属水酸化物、ナトリウムエチラート、カリウム α -ブトキシド等の金属アルコキシド、トリエチルアミン、ピリジン等の有機塩基等を例示することができる。

【0035】(製造法3)本発明化合物(I)のうち、 R^4 が水素原子ではなく、 R^5 が水素原子である化合物(I'-4)、及び R^4 及び R^5 が同時に水素原子でない化合物(I'-5)は、次の方法によって製造することができる。

【0036】

【化8】



【0037】(式中、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 、 l 、 m 及び n は、前記と同じ意味を表し、 X 及び Y は、それぞれ独立してハロゲン原子を表す。)

即ち、一般式(I'-3)で表わされる化合物及び一般式 R^4-X (VI)で表される化合物とを、適当な塩基の存在下に、不活性溶媒中で、室温～150℃で反応させることにより、一般式(I'-4)で表される化合物を製造することができる。

I'-5

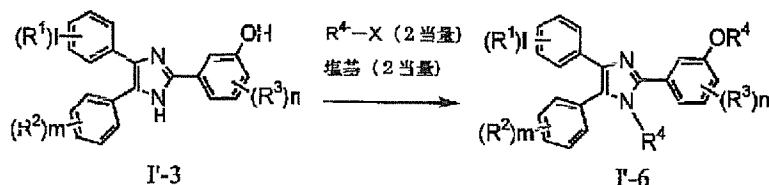
【0038】この反応においては、前記一般式(I'-3)で表される2-フェニルアセトフェノン類1当量に対し、前記一般式 R^4-X (VI)で表される化合物を1～1.2当量程度、適当な塩基を1～1.5当量程度をそれぞれ添加するのが好ましい。

【0039】次いで、得られた一般式(I'-4)で表わされる化合物と、一般式 R^5-Y (VII)で表わされる化合物とを、適当な塩基存在下に、不活性溶媒中で、

室温～150℃で反応させることにより、一般式(I' - 5)で表される化合物を製造することができる。

【0040】この反応においては、前記一般式(I' - 4)で表される化合物1当量に対し、前記一般式R⁵-X(VII)で表される化合物を1～2当量程度、適当な塩基を1～2当量程度をそれぞれ添加するのが好ましい。

【0041】前記一般式(I' - 3)で表わされる化合物と一般式R⁴-X(VI)で表わされる化合物との反応、及び一般式(I' - 4)で表わされる化合物と一般式R⁵-Y(VII)で表わされる化合物との反応に用いることのできる溶媒としては、水、メタノール、エタノール、等のアルコール類、テトラヒドロフラン(THF)等のエーテル類、酢酸エチル等のエステル類、DMF、DMSO、アセトニトリル等を挙げることができる。



【0045】(製造法4)本発明化合物(I')のうち、R⁴が水素原子であり、R⁵が水素原子ではない化合物(I' - 7)、及びR⁴、R⁵が同時に水素原子ではない化合物(I' - 5)は、次の方法によって製造す

【0042】また、この反応に使用することのできる塩基としては、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム等の炭酸塩、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム等の金属水酸化物、ナトリウムエチラート、カリウム *tert*-ブトキシド等の金属アルコキシド、トリエチルアミン、ジイソプロピルエチルアミン、ピリジン等の有機塩基等を例示することができる。

【0043】さらに、R⁴とR⁵とが同じである化合物(I' - 6)は、一般式(I' - 3)で表わされる化合物と2～5当量のR⁴-X(又はR⁵-Y)で表される化合物、及び2～5当量の塩基とを反応させることによっても製造することができる。

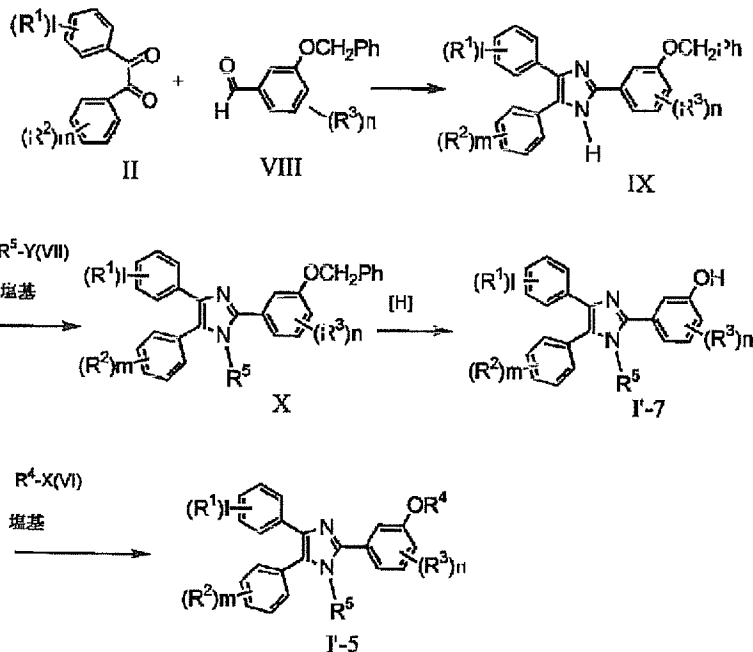
【0044】

【化9】

ることができる。

【0046】

【化10】



【0047】(式中、R¹、R²、R³、R⁴、R⁵、l、m及びnは、前記と同じ意味を表し、X及びYは、それぞれ独立してハロゲン原子を表す。)

先ず、一般式(II)で表わされるジベンゾイル化合物と一般式(VIII)で表わされるベンズアルデヒド誘導体及び酢酸アンモニウム等の塩類とを、前記製造法1に記載したのと同様にして反応させることにより、一般式(I X)で表わされる化合物を得る。

【0048】次いで、このものと一般式R⁵-Y(VII)で表わされる化合物とを、適当な塩基の存在下に、不活性溶媒中で、室温～150℃で反応させることにより、一般式(X)で表される化合物を製造することができる。

【0049】この反応においては、前記一般式(I X)で表される化合物1当量に対し、前記一般式R⁵-Y(VI)で表される化合物を1～2当量程度、適当な塩基を

1～2当量程度をそれぞれ添加するのが好ましい。

【0050】続いて、このものを不活性溶媒中で、一般式(X)で表される化合物1当量に対し、触媒の存在下に、室温～100℃にて、1～50気圧の水素添加による脱ベンジル化を行うことにより、一般式(I' - 7)で表わされる化合物を製造することができる。

【0051】さらに、前記一般式(I' - 7)で表わされる化合物と一般式R⁴ - X (VI)で表わされる化合物とを、適当な塩基の存在下に、不活性溶媒中で、室温～150℃で反応させることにより、一般式(I' - 5)で表される化合物を製造することができる。

【0052】この反応においては、前記一般式(I' - 7)で表される化合物1当量に対し、前記一般式R⁴-X (VI)で表される化合物を1～2当量程度、適当な塩基を1～2当量程度をそれぞれ添加するのが好ましい。

【0053】前記一般式(IX)で表わされる化合物と前記一般式R⁵-Y (VII)で表わされる化合物との反応、及び前記一般式(I' - 7)で表わされる化合物と前記一般式R⁴-X (VI)で表わされる化合物との反応に用いることのできる溶媒としては、例えば、水、メタノール、エタノール等のアルコール類、THF等のエーテル類、酢酸エチル等のエステル類、DMF、DMS

O、アセトニトリル等を挙げることができる。

【0054】この反応に使用することができる塩基としては、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム等の炭酸塩、水酸化ナトリウム等の金属水酸化物、ナトリウムエチラート、カリウム *tert*-ブトキシド等の金属アルコキシド、トリエチルアミン、ピリジン等の有機塩基等を例示することができる。

【0055】水素添加による脱ベンジル化反応に用いることのできる触媒としては、活性炭担持パラジウム、ロジウム、ニッケル、ルテニウム、酸化白金等を例示することができる。触媒の添加量は、一般式(X)で表される化合物1当量に対し、0.001～0.2当量程度が好ましい。

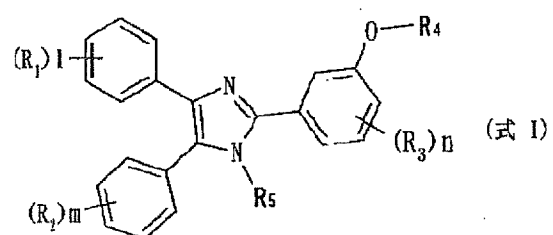
【0056】さらに、水素添加による脱ベンジル化反応に用いることのできる溶媒としては、例えば、エタノール等のアルコール類を挙げることができる。

【0057】このようにして合成することができる化合物例を第1表に示す。表中、Meはメチル基、Etはエチル基、Buはブチル基、Acはアセチル基、Phはフェニル基をそれぞれ表している。

【0058】

【表101】

第 1 表



| 化合物 番号 | (R ₁) I | (R ₂) II | (R ₃) III | R ₄ | R ₅ |
|-----------|-------------------------------------|----------------------|-----------------------|----------------|----------------|
| I-1 | H | H | H | H | H |
| I-2 | 2-Me | H | H | H | H |
| I-3 | 2-F | H | H | H | H |
| I-4 | 2-Cl | H | H | H | H |
| I-5 | 2-OMe | H | H | H | H |
| I-6 | 3-Me | H | H | H | H |
| I-7 | 3-Et | H | H | H | H |
| I-8 | 3-F | H | H | H | H |
| I-9 | 3-Cl | H | H | H | H |
| I-10 | 3-OMe | H | H | H | H |
| I-11 | 3-CF ₃ | H | H | H | H |
| I-12 | 3-OH | H | H | H | H |
| I-13 | 4-Me | H | H | H | H |
| I-14 | 4-Et | H | H | H | H |
| I-15 | 4-CH(CH ₃) ₂ | H | H | H | H |
| I-16 | 4-F | H | H | H | H |
| I-17 | 4-Cl | H | H | H | H |
| I-18 | 4-OMe | H | H | H | H |
| I-19 | 4-OH | H | H | H | H |
| I-20 | 4-CF ₃ | H | H | H | H |
| I-21 | 4-NO ₂ | H | H | H | H |

【0059】

【表102】

第 1 表 (つづき)

| 化合物 番号 | (R ₁) l | (R ₂) m | (R ₃) n | R ₄ | R ₅ |
|-----------|----------------------|---------------------|---------------------|----------------|----------------|
| I-22 | 4-COOEt | H | H | H | H |
| I-23 | 4-SMe | H | H | H | H |
| I-24 | 4-SOMe | H | H | H | H |
| I-25 | 4-SO ₂ Me | H | H | H | H |
| I-26 | 4-NMe ₂ | H | H | H | H |
| I-27 | 4-CN | H | H | H | H |
| I-28 | 4 Cl | H | H | H | H |
| I-29 | 4 | H | H | H | H |
| I-30 | 1 | H | H | H | H |
| I-31 | 4 | H | H | H | H |
| I-32 | 4 | H | H | H | H |
| I-33 | 2 Me, 3-Me | H | H | H | H |
| I-34 | 2 Me, 4-Me | H | H | H | H |
| I-35 | 2-Me, 5-Me | H | H | H | H |
| I-36 | 2 Me, 6-Me | H | H | H | H |
| I-37 | 3 Me, 4-Me | H | H | H | H |
| I-38 | 3 Me, 5-Me | H | H | H | H |
| I-39 | 2 Cl, 3-Cl | H | H | H | H |
| I-40 | 2-Cl, 4-Cl | H | H | H | H |
| I-41 | 2-Cl, 5-Cl | H | H | H | H |
| I-42 | 2-Cl, 6-Cl | H | H | H | H |
| I-43 | 3-Cl, 4-Cl | H | H | H | H |
| I-44 | 3-Cl, 5-Cl | H | H | H | H |
| I-45 | 2-Cl, 3-Me | H | H | H | H |
| I-46 | 2-Cl, 4-Me | H | H | H | H |
| I-47 | 2-Cl, 5-Me | H | H | H | H |
| I-48 | 2-Cl, 6-Me | H | H | H | H |

【0060】

【表103】

第 1 表 (つづき)

| 化合物 番号 | (R ₁) I | (R ₂) m | (R ₃) n | R ₄ | R ₅ |
|-----------|---------------------|----------------------|---------------------|----------------|----------------|
| I-49 | 3-Cl, 4-Me | H | H | H | H |
| I-50 | 3-Cl, 5-Me | H | H | H | H |
| I-51 | 2-Me, 3-Cl | H | H | H | H |
| I-52 | 2-Me, 4-Cl | H | H | H | H |
| I-53 | 2-Me, 5-Cl | H | H | H | H |
| I-54 | 2-Me, 6-Cl | H | H | H | H |
| I-55 | 3-Me, 4-Cl | H | H | H | H |
| I-56 | 3-Me, 5-Cl | H | H | H | H |
| I-57 | 3-Me, 4-F | H | H | H | H |
| I-58 | 3-OMe, 4-OMe | H | H | H | H |
| I-59 | 2-F, 6-F | H | H | H | H |
| I-60 | 2-Cl | 2-Cl | H | H | H |
| I-61 | 3-Me | 2-Cl | H | H | H |
| I-62 | 3-Me | 3-Cl | H | H | H |
| I-63 | 3-Me | 4-Cl | H | H | H |
| I-64 | 3-Me | 2-F | H | H | H |
| I-65 | 3-Me | 3-F | H | H | H |
| I-66 | 3-Me | 4-F | H | H | H |
| I-67 | 3-Me | 2-Me | H | H | H |
| I-68 | 3-Me | 3-Me | H | H | H |
| I-69 | 3-Me | 4-Me | H | H | H |
| I-70 | 3-Me | 2, 4-Cl ₂ | H | H | H |
| I-71 | 4-Me | 2-Me | H | H | H |
| I-72 | 4-Me | 2-F | H | H | H |
| I-73 | 4-Me | 2-Cl | H | H | H |
| I-74 | 4-Me | 2-OMe | H | H | H |
| I-75 | 4-Me | 3-Me | H | H | H |

【0061】

【表104】

第 1 表 (つづき)

| 化合物 番号 | (R ₁) l | (R ₂) m | (R ₃) n | R ₄ | R ₅ |
|-----------|---------------------|---------------------|---------------------|----------------|----------------|
| I-76 | 4-Me | 3-F | H | H | H |
| I-77 | 4-Me | 3-Cl | H | H | H |
| I-78 | 4-Me | 3-OMe | H | H | H |
| I-79 | 4-Me | 4-Me | H | H | H |
| I-80 | 4-Me | 4-F | H | H | H |
| I-81 | 4-Me | 4-Cl | H | H | H |
| I-82 | 4-Me | 4-OMe | H | H | H |
| I-83 | 4-Cl | 2-Me | H | H | H |
| I-84 | 4-Cl | 2-F | H | H | H |
| I-85 | 4-Cl | 2-Cl | H | H | H |
| I-86 | 4-Cl | 2-OMe | H | H | H |
| I-87 | 4-Cl | 3-Me | H | H | H |
| I-88 | 4-Cl | 3-F | H | H | H |
| I-89 | 4-Cl | 3-Cl | H | H | H |
| I-90 | 4-Cl | 3-OMe | H | H | H |
| I-91 | 4-Cl | 4-Me | H | H | H |
| I-92 | 4-Cl | 4-F | H | H | H |
| I-93 | 4-Cl | 4-Cl | H | H | H |
| I-94 | 4-Cl | 4-OMe | H | H | H |
| I-95 | 4-F | 2-Me | H | H | H |
| I-96 | 4-F | 2-F | H | H | H |
| I-97 | 4-F | 2-Cl | H | H | H |
| I-98 | 4-F | 2-OMe | H | H | H |
| I-99 | 4-F | 3-Me | H | H | H |
| I-100 | 4-F | 3-F | H | H | H |
| I-101 | 4-F | 3-Cl | H | H | H |
| I-102 | 4-F | 3-OMe | H | H | H |

【0062】

【表105】

第 1 表 (つづき)

| 化合物 番号 | (R ₁) I | (R ₂) m | (R ₃) n | R ₄ | R ₅ |
|-----------|---------------------|---------------------|---------------------|----------------|----------------|
| I-103 | 4-F | 4-Me | H | H | H |
| I-104 | 4-F | 4-F | H | H | H |
| I-105 | 4-F | 4-Cl | H | H | H |
| I-106 | 4-OMe | 4-OMe | H | H | H |
| I-107 | 4-OMe | 2-Me | H | H | H |
| I-108 | 4-OMe | 2-F | H | H | H |
| I-109 | 4-OMe | 2-Cl | H | H | H |
| I-110 | 4-OMe | 2-OMe | H | H | H |
| I-111 | 4-OMe | 3-Me | H | H | H |
| I-112 | 4-OMe | 3-F | H | H | H |
| I-113 | 4-OMe | 3-Cl | H | H | H |
| I-114 | 4-OMe | 3-OMe | H | H | H |
| I-115 | 4-OMe | 4-Me | H | H | H |
| I-116 | 4-OMe | 4-F | H | H | H |
| I-117 | 4-OMe | 4-Cl | H | H | H |
| I-118 | 4-OMe | 4-OMe | H | H | H |
| I-119 | H | H | 2-Me | H | H |
| I-120 | H | H | 4-Me | H | H |
| I-121 | H | H | 5-Me | H | H |
| I-122 | H | H | 6-Me | H | H |
| I-123 | H | H | 2-Cl | H | H |
| I-124 | H | H | 4-Cl | H | H |
| I-125 | H | H | 5-Cl | H | H |
| I-126 | H | H | 6-Cl | H | H |
| I-127 | H | H | 2-OMe | H | H |
| I-128 | H | H | 4-OMe | H | H |
| I-129 | H | H | 5-OMe | H | H |

【 0063 】

【 表 106 】

第 1 表 (つづき)

| 化合物 番号 | (R ₁) _l | (R ₂) _m | (R ₃) _n | R ₄ | R ₅ |
|-----------|--------------------------------|--------------------------------|--------------------------------|--------------------|----------------|
| I-130 | H | H | 6-OMe | H | H |
| I-131 | H | H | 2-OH | H | H |
| I-132 | H | H | 4-OH | H | H |
| I-133 | H | H | 5-OH | H | H |
| I-134 | H | H | 6-OH | H | H |
| I-135 | H | H | 2-NO ₂ | H | H |
| I-136 | H | H | 4-NO ₂ | H | H |
| I-137 | H | H | 5-NO ₂ | H | H |
| I-138 | H | H | 6-NO ₂ | H | H |
| I-139 | H | H | 4-CF ₃ | H | H |
| I-140 | H | H | 4-CN | H | H |
| I-141 | H | H | 4-COOEt | H | H |
| I-142 | H | H | 4-SMe | H | H |
| I-143 | H | H | 4-SOMe | H | H |
| I-144 | H | H | 4-SO ₂ Me | H | H |
| I-145 | H | H | 4-NMe ₂ | H | H |
| I-146 | H | H | 4-Cl | H | H |
| I-147 | H | H | 4 | H | H |
| I-148 | H | H | 4 | H | H |
| I-149 | H | H | 4 | H | H |
| I-150 | H | H | 4 | H | H |
| I-151 | H | H | H | Ac | H |
| I-152 | H | H | H | COEt | H |
| I-153 | H | H | H | COtBu | H |
| I-154 | H | H | H | COPh | H |
| I-155 | H | H | H | COOMe | H |
| I-156 | H | H | H | CONMe ₂ | H |

【 0064 】

【 表 107 】

第1表 (つづき)

| 化合物 番号 | (R ₁) _l | (R ₂) _m | (R ₃) _n | R ₄ | R ₅ |
|-----------|--------------------------------|--------------------------------|--------------------------------|--|--|
| I-157 | H | H | H | CH ₂ OCH ₂ CH ₃ | H |
| I-158 | H | H | H | CH ₂ OAc | H |
| I-159 | H | H | H | CH ₂ OCOE t | H |
| I-160 | H | H | H | CH ₂ OCOtBu | H |
| I-161 | H | H | H | SO ₂ Me | H |
| I-162 | H | H | H | Tosyl | H |
| I-163 | H | H | H | SO ₂ NMe ₂ | H |
| I-164 | H | H | H | H | Ac |
| I-165 | H | H | H | H | COE t |
| I-166 | H | H | H | H | COPh |
| I-167 | H | H | H | H | COOMe |
| I-168 | H | H | H | H | CONMe ₂ |
| I-169 | H | H | H | H | CH ₂ OCH ₂ CH ₃ |
| I-170 | H | H | H | H | CH ₂ OAc |
| I-171 | H | H | H | H | CH ₂ OCOE t |
| I-172 | H | H | H | H | CH ₂ OCOtBu |
| I-173 | H | H | H | H | SO ₂ Me |
| I-174 | H | H | H | H | SO ₂ Ph |
| I-175 | H | H | H | H | SO ₂ NMe ₂ |
| I-176 | H | H | H | Ac | Ac |
| I-177 | H | H | H | COE t | COE t |
| I-178 | H | H | H | COPh | COPh |
| I-179 | H | H | H | COOMe | COOMe |
| I-180 | H | H | H | CONMe ₂ | CONMe ₂ |
| I-181 | H | H | H | CH ₂ OCH ₂ CH ₃ | CH ₂ OCH ₂ CH ₃ |
| I-182 | H | H | H | CH ₂ OAc | CH ₂ OAc |
| I-183 | H | H | H | CH ₂ OCOE t | CH ₂ OCOE t |

第 1 表 (つづき)

| 化合物 番号 | (R ₁) _l | (R ₁) _m | (R ₃) _n | R ₄ | R ₅ |
|-----------|--------------------------------|--------------------------------|--------------------------------|---|----------------------------------|
| I-184 | H | H | H | CH ₂ OCOtBu | CH ₂ OCOtBu |
| I-185 | H | H | H | SO ₂ Me | SO ₂ Me |
| I-186 | H | H | H | SO ₂ Ph | SO ₂ Ph |
| I-187 | H | H | H | SO ₂ NMe ₂ | SO ₂ NMe ₂ |
| I-188 | H | H | H | Ac | CH ₂ OCOE t |
| I-189 | H | H | H | CH ₂ OCOE t | Ac |
| I-190 | H | H | H | Ac | SO ₂ Me |
| I-191 | H | H | H | SO ₂ Me | Ac |
| I-192 | 3-Me | H | H | Ac | H |
| I-193 | 3-Me | H | H | COEt | H |
| I-194 | 3-Me | H | H | CO(CH ₂) ₃ CH ₃ | H |
| I-195 | 3-Me | H | H | COCH(CH ₃) ₂ | H |
| I-196 | 3-Me | H | H | COCH ₂ OCH ₃ | H |
| I-197 | 3-Me | H | H | COPh | H |
| I-198 | 3-Me | H | H | COOE t | H |
| I-199 | 3-Me | H | H | CONMe ₂ | H |
| I-200 | 3-Me | H | H | CH ₂ OCH ₂ CH ₃ | H |
| I-201 | 3-Me | H | H | CH ₂ OAc | H |
| I-202 | 3-Me | H | H | CH ₂ OCOE t | H |
| I-203 | 3-Me | H | H | CH ₂ OCOtBu | H |
| I-204 | 3-Me | H | H | SO ₂ Me | H |
| I-205 | 3-Me | H | H | SO ₂ Ph | H |
| I-206 | 3-Me | H | H | SO ₂ NMe ₂ | H |
| I-207 | 3-Me | H | H | H | Ac |
| I-208 | 3-Me | H | H | H | COEt |
| I-209 | 3-Me | H | H | H | COPh |
| I-210 | 3-Me | H | H | H | COOMe |

【0066】

【表109】

第 1 表 (つづき)

| 化合物 番号 | (R ₁) l | (R ₂) m | (R ₃) n | R ₄ | R ₅ |
|-----------|---------------------|---------------------|---------------------|--|--|
| I-211 | 3-Me | H | H | H | COOtBu |
| I-212 | 3-Me | H | H | H | CONMe ₂ |
| I-213 | 3-Me | H | H | H | CH ₂ OCH ₂ CH ₃ |
| I-214 | 3-Me | H | H | H | CH ₂ OAc |
| I-215 | 3-Me | H | H | H | CH ₂ OCOE t |
| I-216 | 3-Me | H | H | H | CH ₂ OCOtBu |
| I-217 | 3-Me | H | H | H | SO ₂ Me |
| I-218 | 3-Me | H | H | H | SO ₂ Ph |
| I-219 | 3-Me | H | H | H | SO ₂ NMe ₂ |
| I-220 | 3-Me | H | H | Ac | Ac |
| I-221 | 3-Me | H | H | COEt | COEt |
| I-222 | 3-Me | H | H | COPh | COPh |
| I-223 | 3-Me | H | H | COOMe | COOMe |
| I-224 | 3-Me | H | H | CONMe ₂ | CONMe ₂ |
| I-225 | 3-Me | H | H | CH ₂ OCH ₂ CH ₃ | CH ₂ OCH ₂ CH ₃ |
| I-226 | 3-Me | H | H | CH ₂ OAc | CH ₂ OAc |
| I-227 | 3-Me | H | H | CH ₂ OCOE t | CH ₂ OCOE t |
| I-228 | 3-Me | H | H | CH ₂ OCOtBu | CH ₂ OCOtBu |
| I-229 | 3-Me | H | H | SO ₂ Me | SO ₂ Me |
| I-230 | 3-Me | H | H | SO ₂ Ph | SO ₂ Ph |
| I-231 | 3-Me | H | H | SO ₂ NMe ₂ | SO ₂ NMe ₂ |
| I-232 | 3-Me | H | H | Ac | CH ₂ OAc |
| I-233 | 3-Me | H | H | CH ₂ OAc | Ac |
| I-234 | 3-Me | H | H | Ac | SO ₂ Me |
| I-235 | 3-Me | H | H | SO ₂ Me | Ac |

【0067】(農園芸用殺菌剤)本発明の殺菌剤を実際に施用する際には、有効成分となる一般式(I)の化合物を、他成分を加えず純粋な形で使用できるし、また農薬として使用する目的で一般の農薬のとり得る製剤形態、すなわち、水和剤、粒剤、粉剤、乳剤、水溶剤、懸濁剤及びフロアブル等の形態で使用することもできる。

【0068】農薬製剤中に添加することができる添加剤及び担体としては、固型剤を目的とする場合には、大豆粒、小麦粉等の植物性粉末、珪藻土、燐灰石、石こう、タルク、ベントナイト、パイロフィライト、クレイ等の鉱物性微粉末、安息香酸ソーダ、尿素、芒硝等の有機及

び無機化合物が使用される。

【0069】また、液体製剤を目的とする場合は、クロシン、キシレン及びソルベントナフサ等の石油留分、シクロヘキサン、シクロヘキサノン、ジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシド、アルコール、アセトン、トリクロロエチレン、メチルイソブチルケトン、鉱物油、植物油、水等を溶剤として使用することができる。

【0070】さらに、これらの製剤を均一かつ安定な形態とするために、必要に応じ界面活性剤を添加することもできる。添加することができる界面活性剤としては特に限定はないが、例えば、ポリオキシエチレンが付加し

たアルキルフェニルエーテル、ポリオキシエチレンが付加したアルキルエーテル、ポリオキシエチレンが付加した高級脂肪酸エステル、ポリオキシエチレンが付加したソルビタン高級脂肪酸エステル、ポリオキシエチレンが付加したトリスチルフェニルエーテル等の非イオン性界面活性剤、ポリオキシエチレンが付加したアルキルフェニルエーテルの硫酸エステル塩、アルキルベンゼンスルホン酸塩、高級アルコールの硫酸エステル塩、アルキルナフタレンスルホン酸塩、ポリカルボン酸塩、リグニンスルホン酸塩、アルキルナフタレンスルホン酸塩のホルムアルデヒド縮合物、イソブチレン-無水マレイン酸の共重合物等が挙げられる。

【0071】また有効成分量は、通常、組成物（製剤）全体に対し、好ましくは0.01～90重量%、より好ましくは0.05～85重量%である。

【0072】このようにして得られる水和剤、乳剤、懸濁剤、フロアブル剤等は、水で所定の濃度に希釈して、懸濁液あるいは乳濁液として、粉剤及び粒剤はそのまま植物に散布する方法で使用する事ができる。

【0073】製剤化された本発明の殺菌剤組成物は、そのままで或いは水等で希釈して、植物体、種子、水面又は土壤に施用される。施用量は、気象条件、製剤形態、施用時期、施用方法、施用場所、防除対象病害、対象作物等により異なるが、通常1ヘクタール当たり有効成分化合物量にして1～1,000g、好ましくは10～100gである。

【0074】乳剤、水和剤、懸濁剤、液剤等を水等で希釈して施用する場合、その施用濃度は1～1000ppm、好ましくは10～250ppmであり、粒剤、粉剤等の場合は、通常1kg当たり、0.001～50g、好ましくは0.01～10gが好ましい。

【0075】また、本発明殺菌剤は単独でも十分な効力を発揮するが、各種の殺菌剤、殺虫剤、殺ダニ剤又は共力剤の1種類以上と混合して使用することもできる。本発明殺菌剤と混合して使用できる殺菌剤、殺虫剤、殺ダニ剤、殺線虫剤及び植物成長調整剤としては、以下の様なものが挙げられる。

【0076】殺菌剤：

銅剤：塩基性塩化銅、塩基性硫酸銅等。

硫黄剤：チウラム、マンネブ、マンコゼブ、ポリカーバメート、プロピネブ、ジラム、ジネブ等。

ポリハロアルキルチオ剤：キャプタン、ジクロルフルアニド、フォルベット等。

有機塩素剤：クロロタクロニル、フサライド等。

【0077】有機リン剤：IBP、EDDP、トルクロホスメチル、ピラゾホス、ホセチル等。

ベンズイミダゾール剤：チオファネートメチル、ベノミル、カルベンダジム、チアベンダゾール等。

ジカルボキシイミド剤：イプロジオン、ピンクロゾリン、プロシミドン、フルオリミド等。

カルボキシアミド剤：オキシカルボキシン、メプロニル、フルトラニル、テクロフタラム、トリクラミド、ペンシクロン等。

アシルアラニン剤：メタラキシル、オキサジキシル、フララキシル等。

メトキシアクリレート剤：クレソキシムメチル、アゾキシストロビン、メトミノストロビン

アニリノピリミジン剤：アンドアリン、メパニピリム、ピリメタニル、シプロジニル

【0078】SBI剤：トリアジメホン、トリアジメノール、ビテルタノール、ミクロブタニル、ヘキサコナゾール、プロピコナゾール、トリフミゾール、プロクロラズ、ペフラゾエート、フェナリモル、ピリフェノックス、トリホリン、フルシラゾール、エタコナゾール、ジクロブトラゾール、フルオトリマゾール、フルトリアフェン、ペンコナゾール、ジニコナゾール、シプロコナゾール、イマザリル、トリデモルフ、フェンプロピモルフ、ブチオベート、エボキシコナゾール、メトコナゾール等。

【0079】抗生物質剤：ポリオキシン、プラストサイジンS、カスガマイシン、バリダマイシン、硫酸ジヒドロストレプトマイシン等。

その他：プロパモカルブ塩酸塩、キントゼン、ヒドロキシイソオキサゾール、メタスルホカルブ、アニラジン、イソプロチオラン、プロベナゾール、キノメチオネート、ジチアノン、ジノカブ、ジクロメジン、フェリムゾン、フルアジナム、ピロキロン、トリシクラゾール、オキソリニック酸、ジチアノン、イミノクタジン酢酸塩、シモキサニル、ピロールニトリン、メタスルホカルブ、ジエトフェンカルブ、ビナバクリル、レシチン、重曹、フェナミノスルフ、ドジン、ジメトモルフ、フェナジンオキシド、カルプロパミド、フルスルファミド、フルジオキシニル、ファモキサドン等。

【0080】殺虫・殺ダニ剤：

有機燐及びカーバメート系殺虫剤：フェンチオン、フェニトロチオン、ダイアジノン、クロルピリホス、ES P、バミドチオン、フェントエート、ジメトエート、ホルモチオン、マラソン、トリクロルホン、チオメトン、ホスメット、ジクロルボス、アセフェート、EPBP、メチルパラチオン、オキシジメトンメチル、エチオン、サリチオン、シアノホス、イソキサチオン、ピリダフェンチオン、ホサロン、メチダチオン、スルプロホス、クロルフェンビンホス、テトラクロルビンホス、ジメチルビンホス、プロパホス、イソフェンホス、エチルチオメトン、プロフェノホス、ピラクロホス、モノクロトホス、アジンホスメチル、アルディカルブ、メソミル、チオジカルブ、カルボフラン、カルボスルファン、ベンフラカルブ、フラチオカルブ、プロボキスル、BPMC、MTMC、MIPC、カルバリル、ピリミカーブ、エチオフェンカルブ、フェノキシカルブ等。

【0081】ピレスロイド系殺虫剤：ベルメトリン、シベルメトリン、デルタメスリン、フェンバレート、フェンプロパトリン、ピレトリン、アレスリン、テトラメスリン、レスメトリン、ジメスリン、プロバスリン、フェノトリン、プロトリン、フルバリネート、シフルトリン、シハロトリン、フルシトリネート、エトフェンプロクス、シクロプロトリン、トロラメトリン、シラフルオフェン、プロフェンプロクス、アクリナスリ等。

ベンゾイルウレア系その他の殺虫剤：ジフルベンズロン、クロルフルアズロン、ヘキサフルムロン、トリフルムロン、テトラベンズロン、フルフェノクスロン、フルシクロクスロン、プロプロフェジン、ピリプロキシフェン、メトブレン、カルタップ、チオシクラム、ベンスルタップ、ベンゾエピン、ジアフェンチウロン、アセタミブソド、イミダクロプリド、アセタプリド、ニテンピラム、フィプロニル、硫酸ニコチン、ロテノン、カルタップ、チオシクラム、ベンスルタップ、メタアルデヒド、機械油、BTや昆虫病原ウイルス等の微生物農薬等。

例えば、

| | | |
|-------|-------|---|
| イネ | いもち病 | (<i>Pyricularia oryzae</i>) |
| | 紋枯病 | (<i>Rhizoctonia solani</i>) |
| | 馬鹿苗病 | (<i>Gibberella fujikuroi</i>) |
| | ごま葉枯病 | (<i>Cochliobolus miyabeanus</i>) |
| オオムギ | 褐黒穂病 | (<i>Ustilago nuda</i>) |
| コムギ | 赤かび病 | (<i>Gibberella zeae</i>) |
| | 赤さび病 | (<i>Puccinia recondita</i>) |
| | 眼紋病 | (<i>Pseudocercospora herpotrichoides</i>) |
| | ふ枯病 | (<i>Leptosphaeria nodorum</i>) |
| | うどんこ病 | (<i>Erysiphe gaminis f. sp. tritici</i>) |
| | 紅色雪腐病 | (<i>Monographella nivalis</i>) |
| ジャガイモ | 疫病 | (<i>Phytophthora infestans</i>) |
| ラッカセイ | 褐斑病 | (<i>Mycosphaerella arachidis</i>) |
| テンサイ | 褐斑病 | (<i>Cercospora beticola</i>) |
| キュウリ | うどんこ病 | (<i>Sphaerotheca fuliginea</i>) |
| | 菌核病 | (<i>Sclerotinia sclerotiorum</i>) |
| | 灰色かび病 | (<i>Botrytis cinerea</i>) |
| | べと病 | (<i>Pseudoperonospora cubensis</i>) |
| トマト | 葉かび病 | (<i>Cladosporium fulvum</i>) |
| | 疫病 | (<i>Phytophthora infestans</i>) |
| ナス | 黒枯病 | (<i>Corynespora melongenae</i>) |
| タマネギ | 灰色腐敗病 | (<i>Botrytis allii</i>) |
| イチゴ | うどんこ病 | (<i>Sphaerotheca humuli</i>) |
| リンゴ | うどんこ病 | (<i>Podosphaera leucotricha</i>) |
| | 黒星病 | (<i>Venturia inaequalis</i>) |
| | モニリア病 | (<i>Monilinia mali</i>) |
| カキ | 炭そ病 | (<i>Gloeosporium kaki</i>) |
| モモ | 灰星病 | (<i>Monilinia fructicola</i>) |
| ブドウ | うどんこ病 | (<i>Uncinula necator</i>) |
| | べと病 | (<i>Plasmopara viticola</i>) |
| ナシ | 赤星病 | (<i>Gymnosporangium asiaticum</i>) |

【0082】殺線虫剤：フェナミホス、ホスチアゼート等。

殺ダニ剤：クロルベンジレート、フェニソプロモレート、ジコホル、アミトラズ、BPPS、ベンゾメート、ヘキシチアゾクス、酸化フェンブタスズ、ポリナクチン、キノメチオネート、CPCBS、テトラジホン、アベルメクチン、ミルベメクチン、クロフェンテジン、シヘキサチン、ピリダベン、フェンピロキシメート、テブフェンピラド、ピリミジフェン、フェノチオカルブ、ジエノクロル等。

植物成長調整剤：ジベレリン類（例えばジベレリンA3、ジベレリンA4、ジベレリンA7）、IAA、NAA。

【0083】本発明の農園芸用殺菌剤は、広範囲の種類糸状菌に対し、優れた殺菌力を有することから、花卉、芝、牧草を含む農園芸作物の栽培に際し発生する種々の病害の防除に使用することができる。

【0084】

| | | |
|------|---------|--|
| | 黒斑病 | (<i>Alternaria kikuchiana</i>) |
| チャ | 輪斑病 | (<i>Pestalotia theae</i>) |
| | 炭そ病 | (<i>Colletotrichum theae-sinensis</i>) |
| カンキツ | そうか病 | (<i>Elisinoe fawcetti</i>) |
| | 青かび病 | (<i>Penicillium italicum</i>) |
| 西洋シバ | 雪腐大粒菌核病 | (<i>Sclerotinia borealis</i>) |

等の防除に使用することができる。

【0085】また、近年種々の病原菌においてベンズイミダゾール剤やジカルボキシイミド剤等に対する耐性が発達し、それら薬剤の効力不足を生じており、耐性の病原菌にも有効な薬剤が望まれている。本発明の殺菌剤は感受性のみならず、ベンズイミダゾール剤、ジカルボキシイミド剤に耐性の病原菌にも優れた殺菌効果を有する薬剤である。適用がより好ましい病害としては、トマト疫病、ブドウベと病等が挙げられる。

【0086】本発明殺菌剤は、水棲生物が船底、魚網等の水中接触物に付着するのを防止するための防汚剤として使用することもできる。また、本発明殺菌剤を塗料や

繊維等に混入させることで、壁や浴槽、あるいは靴や衣服の防菌、防黴剤として使用することもできる。

【0087】

【実施例】次に、実施例により本発明を更に詳細に説明する。

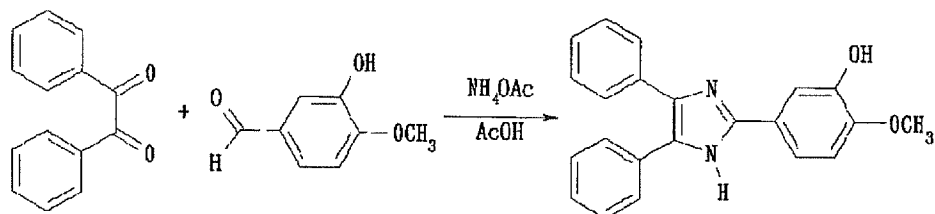
(化合物の製造)

実施例1

2-(3-ヒドロキシ-4-メトキシフェニル)-4,5-ジフェニルイミダゾール (化合物番号II-42) の合成

【0088】

【化11】



【0089】1,2-ジフェニル-1,2-ジオキソエタン1.0g (4.76mmol)、3-ヒドロキシ-4-メトキシベンズアルデヒド0.72g (4.76mmol)、及び酢酸アンモニウム3.7g (48mmol)を酢酸10mlに溶解し、この混合物を4時間加熱還流した。放冷後、反応溶液を水に加え、酢酸エチルで抽出した。有機層を飽和重曹水、次いで飽和食塩水で洗浄した後、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。溶媒を減圧留去して得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグ

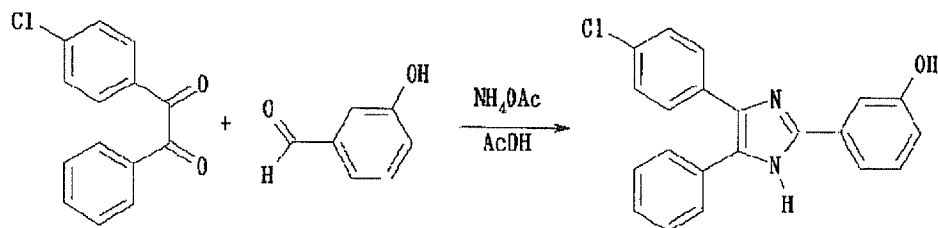
ラフィー (ベンゼン：酢酸エチル=2:1) で精製し、目的物1.45gを得た。収率89%、融点212-215℃

【0090】実施例2

2-(3-ヒドロキシフェニル)-4-(4-クロロフェニル)-5-フェニルイミダゾール (化合物番号II-14) の合成

【0091】

【化12】



【0092】1-(4-クロロフェニル)-2-フェニル-1,2-ジオキソエタン1.0g (4.02mmol)、3-ヒドロキシベンズアルデヒド0.49g (4.02mmol)、及び酢酸アンモニウム3.09g (40.2mmol)を酢酸8mlに溶解し、この混合物を4時間加熱還流した。放冷後、反応溶液を飽和重曹水100mlに加え、酢酸エチルで抽出した。有機層を飽和重曹水、次いで飽和食塩水で洗浄した後、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。減圧濃縮して析出した結晶

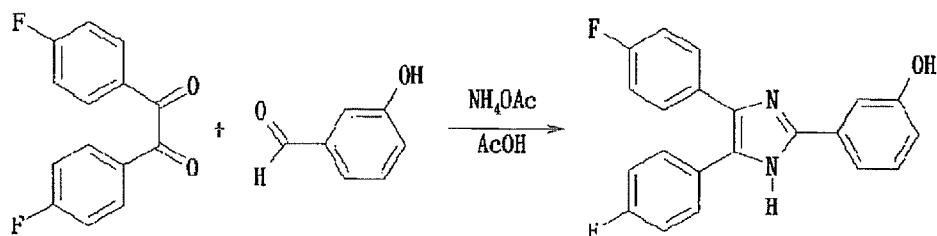
をヘキサン20ml及びジエチルエーテル20mlで洗浄し、目的物1.27gを得た。収率91%、融点250℃以上

【0093】実施例3

2-(3-ヒドロキシフェニル)-4,5-ビス(4-フルオロフェニル)イミダゾール (化合物番号II-36) の合成

【0094】

【化13】



【0095】1, 2-ビス(4-フルオロフェニル) - 1, 2-ジオキソエタン 1.0 g (4.06 mmol)、3-ヒドロキシベンズアルデヒド 0.49 g (4.06 mmol)、及び酢酸アンモニウム 3.1 g (40.6 mmol) を酢酸 10 ml に溶解し、この混合物を 3 時間加熱還流した。放冷後、反応溶液を飽和重曹水に加え、酢酸エチルで抽出した。有機層を飽和重曹水、次いで飽和食塩水で洗浄後、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。減圧濃縮して析出した結晶をヘキサン 20

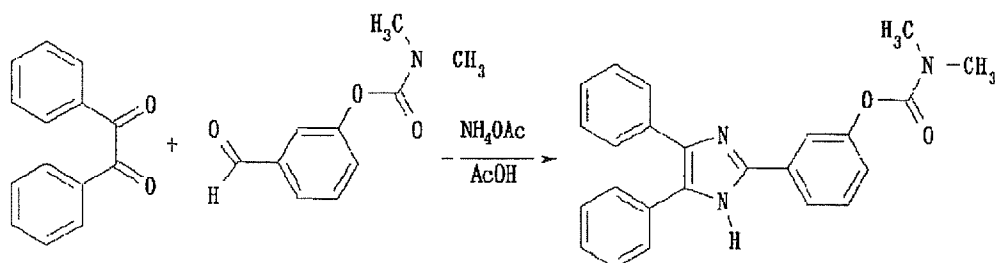
ml 及びジエチルエーテル 20 ml で洗浄し、目的物 1.14 g を得た。収率 81%、融点 250℃ 以上

【0096】実施例 4

2-〔3-(N,N-ジメチルカルバモイルオキシ)フェニル〕-4, 5-ジフェニルイミダゾール (化合物番号 II-54) の合成

【0097】

【化 14】



【0098】1, 2-ジフェニル-1, 2-ジオキソエタン 2.1 g (10 mmol)、3-(N,N-ジメチルカルバモイルオキシ)ベンズアルデヒド 1.9 g (10 mmol)、及び酢酸アンモニウム 3.9 g (100 mmol) を酢酸 30 ml に溶解し、この混合物を 4 時間加熱還流した。放冷後、反応溶液を水に加え、酢酸エチルで抽出した。有機層を飽和重曹水、次いで飽和食塩水で洗浄後、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。溶媒を減圧留去して得られた残渣をシリカゲルカラ

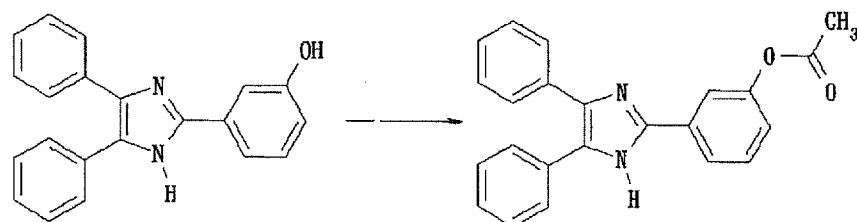
ムクロマトグラフィー (クロロホルム：酢酸エチル = 7 : 3) で精製し、目的物 2.50 g を得た。収率 65%、融点 156-157℃

【0099】実施例 5

2-(3-アセトキシフェニル)-4, 5-ジフェニルイミダゾール (化合物番号 II-51) の合成

【0100】

【化 15】



【0101】2-(3-ヒドロキシフェニル)-4, 5-ジフェニルイミダゾール 0.62 g (2 mmol) をクロロホルム 30 ml に溶解し、そこへアセチルクロライド 0.16 g (2 mmol) 及びトリエチルアミン 0.20 g (2 mmol) を加え、全容を 4 時間加熱還流した。放冷後、反応溶液を水に加え、クロロホルムで抽出した。有機層を飽和食塩水で洗浄後、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。溶媒を減圧留去して得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー (クロロホル

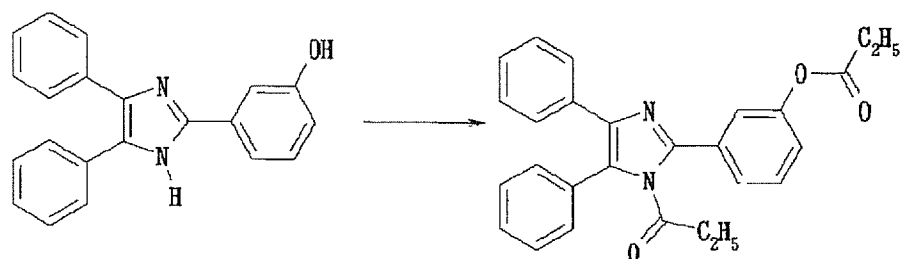
ム：酢酸エチル = 4 : 1) で精製し、目的物 0.54 g を得た。収率 76%、融点 236-237℃

【0102】実施例 6

1-プロピオニル-2-(3-プロピオニルオキシフェニル)-4, 5-ジフェニルイミダゾール (化合物番号 II-60) の合成

【0103】

【化 16】



【0104】2-(3-ヒドロキシフェニル)-4,5-ジフェニルイミダゾール0.50g (1.6mmol)をクロロホルム5mlに溶解し、そこへプロピオニルクロライド0.30g (3.2mmol)及びトリエチルアミン0.32g (3.2mmol)を加え、全容を3時間加熱還流した。プロピオニルクロライド0.07g (0.4mmol)、トリエチルアミン0.08g (0.4mmol)をさらに加え、さらに1時間加熱還流した。放冷後、反応溶液を水に加え、クロロホルムで抽出した。有機層を飽和食塩水で洗浄後、無水硫酸マグ

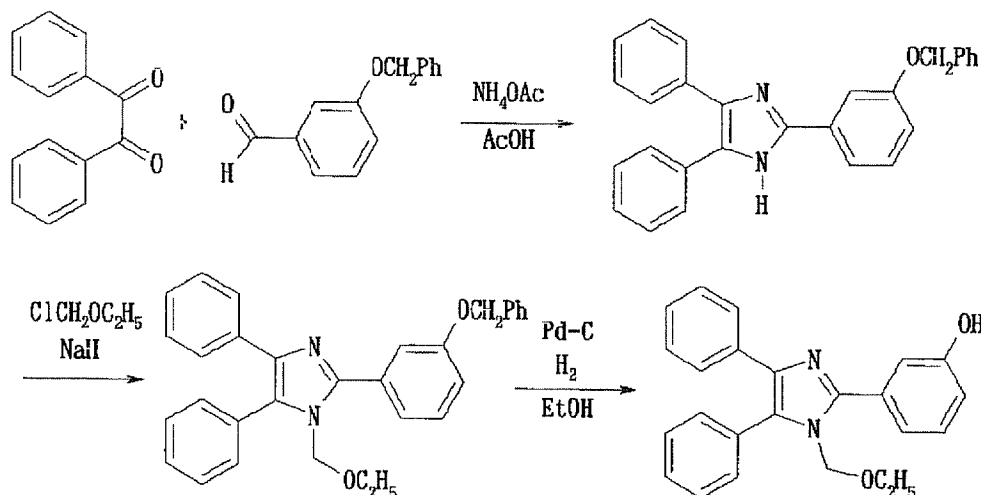
ネシウムで乾燥した。溶媒を減圧留去して得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(クロロホルム:メタノール=19:1)で精製し、目的物0.30gを得た。収率44%、融点80-82℃

【0105】実施例7

1-エトキシメチル-2-(3-ヒドロキシフェニル)-4,5-ジフェニルイミダゾールの合成(化合物番号II-57)

【0106】

【化17】



【0107】1,2-ジフェニル-1,2-ジオキシエタン10.5g (50mmol)を3-ベンジロキシベンズアルデヒド10.6g (50mmol)と実施例1と同様にして反応させ、2-(3'-ベンジロキシフェニル)-4,5-ジフェニルイミダゾール12.4gを得た。

【0108】得られた2-(3'-ベンジロキシフェニル)-4,5-ジフェニルイミダゾール1.0g (2.5mmol)をDMF10mlに溶解し、そこへ60%水素化ナトリウム0.10gを氷冷下に加えた。氷冷下でさらに30分攪拌した後、クロロメチルエチルエーテル0.26g (2.8mmol)を加え、室温で2時間攪拌した。反応液を水100mlに加え、酢酸エチル50mlで抽出し、有機層を飽和食塩水50mlで洗浄し

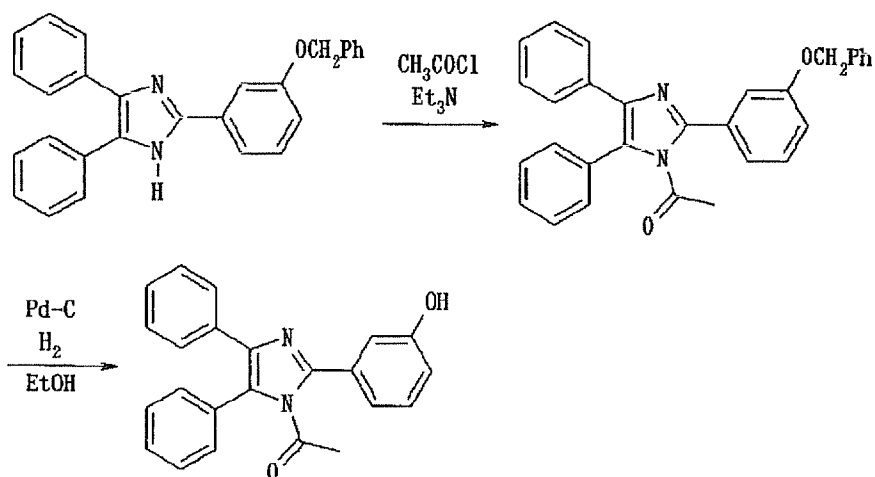
た。溶媒を減圧留去して得られた残渣をエタノール15mlに溶解し、10%パラジウム-カーボン0.5gを加え、水素雰囲気下に、室温で2.5時間、さらに50-60℃で3時間攪拌した。不溶物をろ別し、アセトンで洗浄し、ろ液と合わせ減圧濃縮して得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(ベンゼン:酢酸エチル=9:1)で精製し、目的物0.86gを得た。収率93%、融点67-69℃

【0109】実施例8

1-アセチル-2-(3-ヒドロキシフェニル)-4,5-ジフェニルイミダゾールの合成(化合物番号II-56)の合成

【0110】

【化18】



【0111】実施例7で得られた2-(3'-ベンジロキシフェニル)-4,5-ジフェニルイミダゾール1.0g(27.4mmol)、アセチルクロライド2.58g(32.9mmol)、トリエチルアミン3.04g(30.0mmol)をクロロホルム110ml中、3時間加熱還流を行なった。放冷後、アセチルクロライド2.58g(32.9mmol)、トリエチルアミン3.04g(30.0mmol)を追加し、さらに1時間加熱還流を行なった。放冷後、反応溶液を水に加えクロロホルムで抽出し、有機層を飽和食塩水で洗浄後、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。減圧濃縮後、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(ベンゼン：酢酸エチル=9：1)で精製し、1-アセチル-2-(3'-ベンジロキシフェニル)-4,5-ジフェニルイミダゾール1.41gを得た。(収率12%)

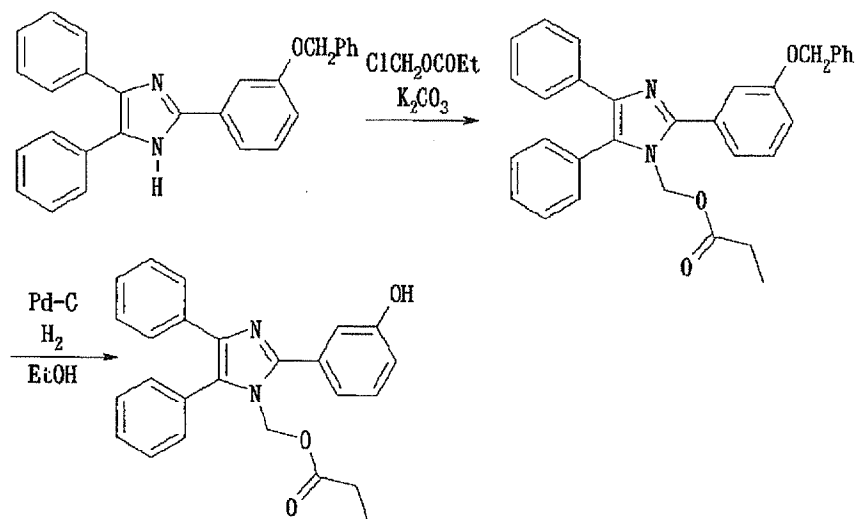
【0112】得られた1-アセチル-2-(3'-ベンジロキシフェニル)-4,5-ジフェニルイミダゾールをエタノール15mlに溶解し、10%パラジウム-カーボン0.5gを加え、水素雰囲気下室温で16時間攪拌した。不溶物をろ過してアセトンで洗浄し、ろ液と合わせ減圧濃縮して得られた残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(ベンゼン：酢酸エチル=9：1)で精製し、目的物0.17gを得た。収率15%、mp. 223-225℃

【0113】実施例9

1-プロピオニルオキシメチル-2-(3'-ヒドロキシフェニル)-4,5-ジフェニルイミダゾール(化合物番号II-58)の合成

【0114】

【化19】



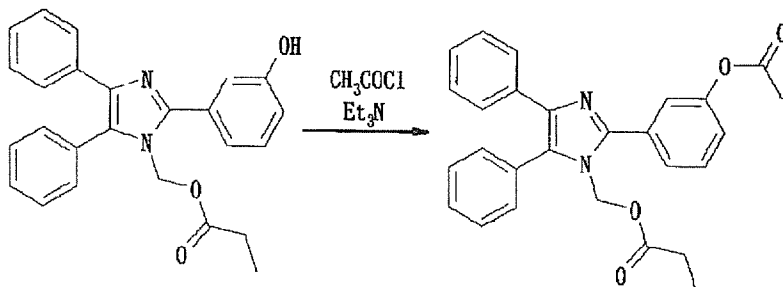
【0115】2-(3'-ベンジロキシフェニル)-4,5-ジフェニルイミダゾール2.0g(4.97mmol)、プロピオニルオキシメチルクロライド1.22g(10.0mmol)、炭酸カリウム1.38g(10.0mmol)をアセトニトリル20ml中、途中6時間後、12時間後にそれぞれプロピオニルオキシメチルクロライド0.61g(5.0mmol)、炭酸

カリウム0.69g(5.0mmol)を加え計20時間加熱還流を行なった。放冷後、反応溶液を水に加え、酢酸エチルで抽出し、有機層を飽和食塩水で洗浄した。減圧濃縮後、残渣をエタノール60mlに溶解し、10%パラジウム-カーボン1.2gを加え、水素雰囲気下50℃で10時間攪拌した後、不溶物をろ過してアセトンで洗浄し、ろ液と合わせ減圧濃縮後で得られた残渣を

シリカゲルカラムクロマトグラフィー（ベンゼン：酢酸エチル＝9：1）で精製し、目的物0.2gを得た。収率10%、mp. 172-174℃

【0116】実施例10

1-プロピオニルオキシシメチル-2-(3'-アセトキシ



【0118】実施例9で得られた1-プロピオニルオキシシメチル-2-(3'-ヒドロキシフェニル)-4,5-ジフェニルイミダゾール1.19g、アセチルクロライド0.23g (2.93mmol)、トリエチルアミン0.30g (2.97mmol)をクロロホルム15ml中、4時間加熱還流を行なった。放冷後、反応溶液を水に加えクロロホルムで抽出し、有機層を飽和食塩水で洗浄後、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。減圧濃縮後、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（ベン

シフェニル)-4,5-ジフェニルイミダゾール（化合物番号II-61）の合成

【0117】

【化20】

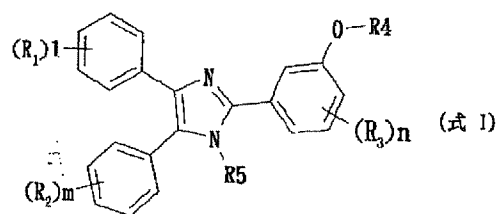
ゼン：酢酸エチル＝9：1）で精製し、目的物0.44gを得た。収率33%、mp. 161-162℃

【0119】以上のようにして得られた本発明化合物を、第2表にまとめて示した。なお、表中、Meはメチル基、Etはエチル基、Buはブチル基、Acはアセチル基、Phはフェニル基、Tosylは4-メチルフェニルスルホニル基をそれぞれ表わす。

【0120】

【表201】

第 2 表



| 化合物 番号 | (R1)1 | (R2)m | (R3)n | R4 | R5 | 物理定数 mp (°C) |
|-----------|-------------------|-------|-------|----|----|-----------------|
| II-1 | H | H | H | H | H | 250up |
| II-2 | 2-Me | H | H | H | H | 250up |
| II-3 | 2-F | H | H | H | H | 250up |
| II-4 | 2-Cl | H | H | H | H | 250up |
| II-5 | 3-Me | H | H | H | H | 250up |
| II-6 | 3-Et | H | H | H | H | 200-201 |
| II-7 | 3-F | H | H | H | H | 250up |
| II-8 | 3-Cl | H | H | H | H | 250up |
| II-9 | 3-OMe | H | H | H | H | 130-135 |
| II-10 | 3-CF ₃ | H | H | H | H | 240-242 |
| II-11 | 3-OH | H | H | H | H | 182-184 |
| II-12 | 4-Me | H | H | H | H | 90-93 |
| II-13 | 4-F | H | H | H | H | 254-256 |
| II-14 | 4-Cl | H | H | H | H | 250up |
| II-15 | 4-OH | H | H | H | H | amorphous |
| II-16 | 4-CF ₃ | H | H | H | H | 241-243 |
| II-17 | 2-Me, 3-Me | H | H | H | H | 236-239 |
| II-18 | 2-Me, 5-Me | H | H | H | H | 248-250 |
| II-19 | 3-Me, 4-Me | H | H | H | H | 234-238 |

【0121】

【表202】

第 2 表 (つづき)

| 化合物 番号 | (R1) l | (R2) m | (R3) n | R4 | R5 | 物理定数 mp (°C) |
|-----------|--------------|------------|--------|----|----|-----------------|
| II-20 | 3-Me, 5-Me | H | H | H | H | 243-247 |
| II-21 | 2-Me, 6-Me | H | H | H | H | amorphous |
| II-22 | 2-Cl, 4-Cl | H | H | H | H | 116-120 |
| II-23 | 2-F, 6-F | H | H | H | H | 250-251 |
| II-24 | 3-Me, 4-F | H | H | H | H | 248-249 |
| II-25 | 3-OMe, 4-OMe | H | H | H | H | 126-130 |
| II-26 | 2-Cl | 2-Cl | H | H | H | 110-115 |
| II-27 | 3-Me | 2-Cl | H | H | H | 250up |
| II-28 | 3-Me | 3-Cl | H | H | H | 250up |
| II-29 | 3-Me | 4-Cl | H | H | H | 253-254 |
| II-30 | 3-Me | 4-F | H | H | H | 245-247 |
| II-31 | 3-Me | 2-Me | H | H | H | 242-244 |
| II-32 | 3-Me | 3-Me | H | H | H | 250up |
| II-33 | 3-Me | 4-Me | H | H | H | 236-237 |
| II-34 | 3-Me | 2-Cl, 4-Cl | H | H | H | 208-210 |
| II-35 | 4-Me | 4-Me | H | H | H | 82-86 |
| II-36 | 4-F | 4-F | H | H | H | 250up |
| II-37 | H | H | 6-Me | H | H | 212-215 |
| II-38 | H | H | 2-Cl | H | H | 195-198 |
| II-39 | H | H | 4-Cl | H | H | 222-224 |
| II-40 | H | H | 6-Cl | H | H | 197-200 |
| II-41 | H | H | 2-OMe | H | H | 88-92 |
| II-42 | H | H | 4-OMe | H | H | 212-215 |
| II-43 | H | H | 5-OMe | H | H | 234-236 |
| II-44 | H | H | 6-OMe | H | H | amorphous |

【0122】

【表203】

第 2 表 (つづき)

| 化合物 番号 | (R1) l | (R2) m | (R3) n | R4 | R5 | 物理定数 mp (°C) |
|-----------|--------|--------|-------------------|---|--|-----------------|
| II-45 | H | H | 2-OH | H | H | 169-172 |
| II-46 | H | H | 4-OH | H | H | 104-108 |
| II-47 | H | H | 5-OH | H | H | 162-165 |
| II-48 | H | H | 6-OH | H | H | 208-211 |
| II-49 | H | H | 4-NO ₂ | H | H | 216-219 |
| II-50 | H | H | 6-NO ₂ | H | H | 158-162 |
| II-51 | H | H | H | Ac | H | 236-237 |
| II-52 | H | H | H | COEt | H | 216-217 |
| II-53 | H | H | H | COtBu | H | 234-236 |
| II-54 | H | H | H | CONMe ₂ | H | 156-157 |
| II-55 | H | H | H | Tosyl | H | 200-201 |
| II-56 | H | H | H | H | Ac | 223-225 |
| II-57 | H | H | H | H | CH ₂ OCH ₂ CH ₃ | 67-69 |
| II-58 | H | H | H | H | CH ₂ OCOCH ₂ CH ₃ | 172-174 |
| II-59 | H | H | H | Ac | Ac | 145-147 |
| II-60 | H | H | H | COEt | COEt | 80-82 |
| II-61 | H | H | H | Ac | CH ₂ OCOCH ₂ CH ₃ | 161-162 |
| II-62 | 3-Me | H | H | Ac | H | 213-215 |
| II-63 | 3-Me | H | H | CO(CH ₂) ₃ CH ₃ | H | 150-152 |
| II-64 | 3-Me | H | H | COCH(CH ₂) ₂ | H | 165-166 |
| II-65 | 3-Me | H | H | COCH ₂ OCH ₃ | H | 164-167 |
| II-66 | 3-Me | H | H | COEt | H | 192-195 |
| II-67 | 3-Me | H | H | H | Ac | 122-124 |
| II-68 | 3-Me | H | H | H | COEt | 141-142 |
| II-69 | 3-Me | H | H | H | COOtBu | 144-146 |

【0123】

【表204】

第 2 表 (つづき)

| 化合物 番号 | (R1) l | (R2) m | (R3) n | R4 | R5 | 物理定数 mp (°C) |
|-----------|--------|--------|--------|------|--|-----------------|
| II-70 | 3-Me | H | H | H | CH ₂ OCH ₂ CH ₃ | 95-97 |
| II-71 | 3-Me | H | H | H | CH ₂ OCOEt | 152-154 |
| II-72 | 3-Me | H | H | Ac | Ac | 110-112 |
| II-73 | 3-Me | H | H | COEt | COEt | 141-142 |

【0124】また、表中の化合物の ¹H-NMR データ
を第3表にまとめて示した。

【0125】
【表301】

第3表

| 化合物番号 (溶媒) | ¹ H-NMRデータ (δ ppm) |
|---|--|
| II-1(DMSO-d ₆) | 6.77(1H, m), 7.2-7.6(18H, m), 9.54(1H, s), 12.60(1H, s) |
| II-2(CDCl ₃ +DMSO-d ₆) | 8.92(3H, s), 6.90(1H, d), 7.20-7.33(6H, m), 7.33-7.55(6H, m), 7.68(1H, m) |
| II-3(CDCl ₃ +DMSO-d ₆) | 6.82(1H, m), 7.45-7.20(7H, m), 7.70-7.59(5H, m), 9.00(1H, bs) |
| II-4(CDCl ₃ +DMSO-d ₆) | 6.85(1H, m), 7.03(4H, m), 7.25(1H, t), 7.61-7.49(6H, m) |
| II-5(CDCl ₃) | 8.03(3H, s), 8.10(3H, s), 6.31(1H, m), 7.17(1H, t), 7.2-7.7(12H, m), 10.27(1H, bs) |
| II-6(DMSO-d ₆) | 2.31(3H, s), 7.14(1H, m), 7.2-7.6(11H, m), 7.85(1H, s), 7.93(1H, d), 11.76(1H, s) |
| II-7(CDCl ₃) | 0.93(3H, t), 1.29(3H, t), 2.36(2H, q), 2.62(2H, q), 7.2-7.4(4H, m), 7.87-7.57(10H, m) |
| II-8(CDCl ₃) | 1.15(3H, t), 3.34(2H, q), 5.06(2H, s), 6.83(1H, m), 7.1-7.3(5H, m), 7.4-7.6(7H, m), 7.68(1H, bs) |

【0126】(農園芸用殺菌剤)次に、本発明の殺菌剤組成物の実施例を若干示すが、添加物及び添加割合は、これら実施例に限定されるべきものではなく、広範囲に変化させることが可能である。

【0127】実施例9 水和剤

本発明化合物 40部
珪藻土 53部
高級アルコール硫酸エステル 4部
アルキルナフタレンスルホン酸塩 3部
以上を均一に混合して微細に粉碎すれば、有効成分40%の水和剤を得る。

【0128】実施例10 乳剤

本発明化合物 30部
キシレン 33部
ジメチルホルムアミド 30部
ポリオキシエチレンアルキルアリールエーテル 7部
以上を混合溶解すれば、有効成分30%の乳剤を得る。

【0129】実施例11 懸濁剤

本発明化合物 10部
リグニンスルホン酸ナトリウム 4部
ドデシルベンゼンスルホン酸ナトリウム 1部
キサンタンガム 0.2部
水 84.8部
以上を混合し、粒度が1ミクロン以下になるまで湿式粉碎すれば、有効成分10%の懸濁剤を得る。

【0130】

【発明の効果】次に、本発明化合物を有効成分として含有する組成物が、農園芸用殺菌剤として有用であることを各種試験例によって示す。

【0131】試験例1 ブドウベと病防除試験

素焼きポットで栽培したブドウ幼苗(品種「甲州」、2葉期)に、実施例10の乳剤を有効成分200ppmの濃度で散布した。散布後、室温で自然乾燥し、ブドウベと病菌(*Plasmopara viticola*)の遊走子囊懸濁液を噴霧接種し、明暗を12時間毎に繰り返す高湿度の恒温室(20℃)に10日間保持した。葉上の病斑出現状態を無処理と比較調査し、防除効果を求めた。その結果、以下の化合物が75%以上の防除効果を示した。

【0132】化合物番号: II-1、II-2、II-3、II-4、II-5、II-6、II-7、II-8、II-9、II-10、II-11、II-12、II-13、II-14、II-15、II-16、II-17、II-18、II-19、II-20、II-21、II-22、II-23、II-24、II-25、II-26、II-29、II-30、II-31、II-33、II-34、II-35、II-36、II-37、II-39、II-40、II-41、II-42、II-54、II-56、II-57、II-60、II-62、II-65、II-67、II-68、II-70

【0133】試験例2 トマト疫病防除試験

素焼きポットで栽培したトマト幼苗(品種「レジナ」、4~5葉期)に、本発明化合物の乳剤を有効成分200ppmの濃度で散布した。散布後、室温で自然乾燥し、トマト疫病菌(*Phytophthora infestans*)の遊走子囊懸濁液を噴霧接種し、明暗を12時間毎に繰り返す高湿度の恒温室(20℃)に4日間保持した。葉上の病斑出現状態を無処理と比較調査し、防除効果を求めた。その結果、以下の化合物が75%以上の防除効果を示した。

【0134】化合物番号: II-1、II-2、II-3、II

-4、II-5、II-6、II-7、III-8、II-9、II
-10、II-12、II-13、II-14、II-15、II
-16、II-17、II-18、II-19、II-20、II
-21、II-22、II-23、II-24、II-25、II
-26、II-27、II-28、II-29、II-30、II

-31、II-32、II-33、II-34、II-35、II
-36、II-37、II-39、II-40、II-51、II
-52、II-56、II-57、II-59、II-60、II
-62、II-65、II-67、II-68、II-69、II
-70、II-72

フロントページの続き

(72)発明者 斎賀 睦幸
神奈川県小田原市高田345 日本曹達株式
会社小田原研究所内
(72)発明者 濱村 洋
神奈川県小田原市高田345 日本曹達株式
会社小田原研究所内

(72)発明者 杉浦 徹也
神奈川県小田原市高田345 日本曹達株式
会社小田原研究所内
Fターム(参考) 4H011 AA01 AA03 AD01 BA05 BB09
BC03 BC06 BC07 BC19 BC20
DA14 DA15 DA16 DD03 DE15
DH14